

固体核径迹技术及其在环境 医学中的应用

杨瑞瑛

(中国科学院高能物理所,核分析技术重点实验室 北京 100039)

摘要 评述了固体核径迹技术近年来的进展,简要介绍该技术的原理、特点、实验装置及其应用,及其在环境科学、生物医学研究中的应用前景。

关键词 固体核径迹 环境科学 医学

环境中天然铀(U)和钍(Th)元素广泛存在于地壳中,²³³Th衰变的子体为²²⁰Rn($T_{1/2}$ 半衰期为56s),²³⁸U衰变的子体²²²Rn($T_{1/2}=3.8$ d),²³⁵U衰变的子体²²⁰Rn($T_{1/2}=4$ s)。这三种氡同位素以及它们瞬发的 α 放射性子体均能在探测器上留下信息,其中²²²Rn寿命较长,通常指的氡一般就是指放射性核素²²²Rn。氡气可以在各种因素的作用下穿过岩石、土壤逸出地球表面进入大气层,建筑物中的氡主要是从地下或建筑材料中逸出并通过水管、煤气管道和其它生活用品进入人们的生活环境。氡气是一种气体放射性元素,环境中的氡很容易经过呼吸道吸入人体,若进入肺部,则氡及其 α 子体会粘附在肺气管壁上形成长期的内辐射,直接损害肺细胞,导致肺癌。氡还可诱发髓性白血病、胃癌、皮肤癌以及出现于儿童的其它癌症。60~80岁的癌症患者与氡辐射关系密切。美国环保局估计,在美国大约有两万人因室内氡浓度过高而患肺癌死亡^{1,2},据文献³报道:人类受到氡及其子体的照射量占有天然和人工辐射源照射所致有效剂量当量的50%以上。氡已成为仅次于吸烟的第二致癌的19种最主要物质之一。发达国家早在上世纪70年代便重视生活中氡浓度监测和氡污染的防治,我国虽然已经开展此项研究,但深度和广度还有待进一步开拓。氡浓度的测定是首要问题,核径迹技术测氡具有灵敏度高、安全可靠的特点,是目前其它技术难以比拟的。

1 固体核径迹

1959年 Silk 等人⁴提出:重带电粒子通过固体绝缘物质时,在途径中能留下永久的辐射损伤。经电子显微镜观察,在受过裂变碎块轰击的天然云母片中发现了径迹,证实了此预言的正确。1962年 Price⁵成功的利用化学试剂蚀刻方法,将径迹从纳米

级扩大到微米级,从而能被普通光学显微镜观察到,由此导致一种新型的核径迹探测器的诞生。1962年 Fleischer 和 Price^{6,7}开始对玻璃和塑料等人工制造的非晶态固体中核径迹进行蚀刻研究,把可用作固体核径迹的材料和种类从天然矿物和化合物晶体扩大到人工合成的非晶态,使其应用范围扩大而成为有实用价值的探测器,并于1975年对固体核径迹探测器的原理和应用作了全面总结⁸。目前已经知道的能够形成辐射损伤、经过化学蚀刻可以观察到径迹的材料有上百种⁹。发展很快,在许多领域发挥重要作用,特别是在环境科学、生物医学、辐射剂量学、考古学、地质学等方面;可以说很少有哪种带电粒子探测器能像固体核径迹探测器这样得到如此广泛的应用。

1.1 核径迹形成的原理

带电粒子进入到固体中,可能发生两种不同的碰撞作用,电子碰撞作用和原子碰撞作用。发生的几率随离子速度而变化,速度高时主要是与固体中原子的轨道电子发生库仑相互作用,使电子激发到较高能级或使其脱离原子成为次级电子。当带电离子在固体中慢化、速度降到与轨道电子的速度相接近时,主要是发生原子碰撞,即运动的离子与阻止物质中原子或离子碰撞而损失其能量,造成阻止物质中原子移位和空位损伤。当材料受到辐射损伤时,离子的能量大部分集中地沉积在其轨迹附近,沿其轨迹造成损伤的核心区域(即受严重辐射损伤的狭窄区域),其半径约为几纳米,这种损伤就是潜径迹。这种几个纳米的潜径迹只有利用透射电子显微镜及扫描隧道显微镜才能直接观察到。

1.2 核径迹的显示

核径迹的显示是核径迹学研究的重要内容,化学蚀刻显示径迹是研究最多、用得最为广泛的方法。进行化学蚀刻时,沿径迹损伤方向的径向蚀刻速度

要比未受损伤的部位的总体蚀刻速度快得多。由于这种从优蚀刻使只有几纳米的潜径迹,随着蚀刻时间的增加而扩大到微米量级,成为普通光学显微镜下可见的径迹,根据这一原理发展起来的带电粒子探测器,称为固体核径迹探测器。能够形成辐射损伤,经化学蚀刻可以观察到径迹的材料主要有三大类:(1)矿物类如云母、磷灰石、榍石和锆石等;(2)塑料类如聚碳酸酯(Lexan、朝阳一号)、硝酸纤维素(LR115)、CR-39及CSR。

在环境科学和医学中,用得最为广泛的是塑料类探测器。实验所需装置为恒温槽及蚀刻架,探测器在照射和使用前后要保持清洁,避免灰尘和划痕,不用手接触待测表面,选择适合的蚀刻条件,包括蚀刻剂的配方、蚀刻温度和蚀刻时间。

表1 几种探测器材料中核径迹的蚀刻条件^{10~14}

材料名称	蚀刻条件				
CR-39	20%	NaOH (或 KOH)	3~6h,	70℃	
	或 6.25	mol/L	NaOH,	6h,	70℃
聚碳酸酯 (Lexan, 朝阳1号)	6.25	mol/L	NaOH,	20min,	50℃
	6.25	mol/L	NaOH	20L 5~2h,	30℃
硝酸纤维素 (LR-115)	2.5	mol/L	NaOH,	20~115min	60℃
CSR	6.0	mol/L	NaOH,	16h,	75℃

固体核径迹探测器的测量,主要使用普通光学显微镜来观察测量蚀刻好的径迹。

2 固体核径迹探测器在环境科学中的应用

2.1 环境中氡的测定

测定²²²Rn的装置由CR-39、CSR或LR-115塑料探测器组件及可透性膜组成。这种膜能使²²²Rn穿过而阻止²²⁰Rn, ²¹⁹Rn, ²²²Rn子体等 α 发射体的进入,²²²Rn进入探测空间后跟着有子体产生。这种²²²Rn的测定,测定结果重复性好,可以长时间进行积分测量,不需动力、很方便。这种被动式氡监测装置有四种类型:(1)开口杯 高9.5cm,杯口直径6.8cm,底部直径5.4cm的塑料杯,底部放塑料探测器;(2)膜杯 杯的开口用一塑料膜罩上,只允许²²²Rn进入杯内,挡掉²²⁰Rn, ²¹⁹Rn及 α 发射体的进入,同时又可防水凝杯内的影响,广泛用于室内外的氡监测;(3)过滤型杯的开口用一憎水多孔滤布罩于杯口,使氡同位素完全能渗入杯内,而排除其子体,记录的是²²²Rn+²²⁰Rn+²¹⁹Rn;(4)裸探测器 把塑料探测器直接固定在一张卡片上,这样探测器可以接受²¹²Pb在空气中射程9.1cm半径的半球空气内的 α 粒子或²¹⁴Pb在空气中射程6.9cm半径的半球空气内的 α 粒子。所以在裸探测器的这个范围内不

能有其他物体。

施锦华等¹⁵用CSR探测器对肺癌发病率较高的哈尔滨市以及延安市窑洞建筑物室内外氡气进行了测量,结果表明:哈尔滨31栋建筑物内测得氡的分布范围16~144Bq/m³,平均为73.1±37Bq/m³室外为17~23Bq/m³。延安氡的分布范围13~78Bq/m³,不同建筑材料的住宅中氡的浓度有很大的差别,泥木结构氡的浓度高于砖混、砖木结构。杨庆明等¹⁶用CSR固体径迹探测器对郑州市的行政区、二七区和中原区的八个点进行了氡气分布的测定。行政区内氡气明显高于二七区和中原区,这是由于行政区地势较低,地下水位高、有地热矿泉存在,地热矿泉的存在影响着氡气的分布。行政区氡的浓度分布为102.8~164.7Bq/m³,明显高于1996年颁布的国家标准¹⁷<100Bq/m³。二七区氡浓度为53.2~64Bq/m³,中原区为45.8~47.7Bq/m³。不同楼层氡气分布也不一样,一楼高于二楼,水泥地面的居室高于木板地居室。孟文斌¹⁸用固体径迹法测量沈阳市室内氡浓度,选择砖混结构的楼户17户,将CSR探测器分别于夏季(6~8月),秋冬季(10~12月),冬春季(1~4月),进行氡的测量得全年氡浓度的分布为15.0~199.0Bq/m³,陈凌等¹⁹用Makrofol聚碳酸酯和LR-115探测器测量地下室的氡浓度为159±32Bq/m³,贾文懿等²⁰用固体核径迹探测器,在室内较理想条件下,进行了氡及其子体自身固有的运移规律与机理研究,实验发现:(1)氡及其子体在理想条件下的空气中,其纵向运移能力远大于横向,前者>90%,后者<10%;(2)氡及其子体的比重远大于空气,但它们向上运移几率明显大于横向扩散几率,而与向下运移几率相当,这表明氡及其子体自身具有很强的向上运移能力;(3)氡及其子体和母体衰变放出⁴He粒子,减速后的⁴He可与它们形成团簇,由于He的比重运比空气小,该团簇将向上运移。

2.2 环境水样中铀的测定

环境水、天然水、矿泉水、饮用水和各种饮料都直接或间接与人类健康有关,通常水中含铀量较低,用常规方法分析需对样品作高富集前处理,而采用裂变径迹技术则很简便,直接取1~2滴水样便能分析出 $\mu\text{g/L}$ 量级的含铀量。这种方法适用于取样量少,以及含铀量低的样品。

样品制备 选用聚碳酸酯薄膜为径迹探测器,膜片裁成适当大小(如2×2cm²),用乙醇、稀硝酸及去离子水清洗干净,在无尘埃环境中晾干,备用。在洁净工作台上取20~75 μL 样品滴于探测器上,用红外

灯烤干,再用一片清洗好的探测器片覆盖在非挥发性残渣上,使其成为夹心,用高纯铝箔包好。

标准制备 将配制好的已知浓度的铀标准溶液按照样品制备的方法制备标准样品,将制好的样品连同标准送反应堆照射。冷却后,取出探测器片,分别经稀硝酸和蒸馏水清洗,然后用 6.25mol/L NaOH , 80min , 50°C 下蚀刻,用蒸馏水洗净,晾干,用普通光学显微镜(约 600 倍)把每一样品水渍区全部的径迹都扫描出来。当采用标准铀溶液求含量时,因所用标准和样品是在完全相同的实验条件下照射和处理的,可用下式计算样品中的含量:

$$C_u = K \cdot T_{\text{样}}$$

$$K = C_{\text{标}} / T_{\text{标}}$$

式中 $C_{\text{标}}$ 和 $T_{\text{标}}$, 分别为标准溶液中铀的浓度和径迹数, C_u 和 $T_{\text{样}}$ 分别为样品中铀的浓度和径迹数。

章有余等²¹用裂变径迹法测定了四川地区的雨水、饮用水、河水、井水中铀的含量。成都雨水中铀的含量为 $0.15\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 饮用水为 $2.38\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 宁南河水为 $1.7\sim 3.4\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 广汉井水为 $4.3\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 锦江河水为 $3.5\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。据文献 [9] 报道,用裂变径迹法测定了北京、兰州等城市的自来水含铀量,北京市为 $1.3\sim 8.8\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 兰州等为 $8.3\sim 13.4\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。并利用此技术对 24700km^2 的洞庭湖水系 100 余处断面的河水、水库水和泉水等原水和过滤水中的含铀量进行了测定,全面评价了洞庭湖水系和湘、资、沅、澧各流域铀的水环境背景值,湘江分布范围 $0.05\sim 1.30\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 资水为 $0.08\sim 0.78\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 源江为 $0.17\sim 0.41\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 澧水为 $0.03\sim 0.57\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。林俊英等²²用裂变径迹技术测定了饮料和矿泉水中的铀、饮料中铀的含量为 $0.26\sim 1.65\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值为 $0.93\pm 0.05\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 矿泉水中含铀量平均为 $9.20\pm 0.16\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 约为饮料铀含量的 10 倍。

3 医学中的应用

天然铀是具有化学毒害和辐射损伤双重毒害的元素,因此测定进入人体的铀在血液和尿液中的含量具有实际意义,其实验和计算方法与水中铀的分析相似。程玉麟等²³用裂变径迹法测定 10 名健康人,4 名从事铀研究者和 3 名白血病患者血液中的铀的含量,实验结果是健康人血液中的铀的含量分布在 $0.243\sim 0.38\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值为 $0.306\pm 0.01\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 从事铀研究工作者为 $0.307\sim 0.557\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均为 $0.453\pm 0.015\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 白血病患者为 $0.139\sim 1.207\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,

平均值为 $0.774\pm 0.018\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。白血病患者血液中的铀含量为正常人的两倍左右。章有余等²¹用裂变径迹法测定成都地区人血、人尿和牙膏中铀的含量,1986 年测得血液中铀分布在 $0.36\sim 1.2\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 尿中平均含量为 $0.10\pm 0.03\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 1987 年测得人血中铀的分布范围为 $0.1\sim 0.82\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 尿平均为 $0.054\pm 0.01\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 牙膏中铀的分布范围为 $0.43\sim 10.7\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。据报道²³美国正常人血中铀的含量为 $0.861\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 丹麦正常人血为 $0.483\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 白血病人血为 $3.1\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 墨西哥正常人为 $0.84\sim 0.91\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 从事铀工作者为 $0.98\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 白血病人血中的铀含量为 $1.7\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右。陈怀录等²⁴选用聚碳酸酯薄膜为径迹探测器,对兰州市 10 个不同年龄,不同性别的健康人的尿样中微量铀进行了测定,其含量分别在 $0.13\sim 1.06\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间,并与黄河兰州段、兰州自来水中铀含量进行比较,表明人尿中铀的含量低于自来水($U=11\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)中的含量,人尿中铀的排出量最大为 42.2%。

综上所述,固体核径迹探测器在环境科学、生物医学中已得到广泛的应用,并存在广泛的应用前景。

参考文献

- 1 Fleischer RL. Radon in the environment opportunities and hazards. Nucl Tracks, 1988, 14(4):421~435
- 2 Clarke HG, Southwood TRE. Risk from ionizing radiation. Nature. 1989, 338:197~198
- 3 卢伟. 居室氡气致癌与防治, 北京:地质出版社, 1995
- 4 Silk ECH and Barnes RS. Examination of fission fragment tracks with an electron microscope. phil Mag, 1959, 4:970~976
- 5 Price PB and walker RM. Theories of birefringence induced in liquids by ultrasonic waves J Appl Phys, 1962, 33:3407~3412
- 6 Fleischer RL and Price PB. Tracks of charged particles in High Polymers. Science, 1963, 140:1221
- 7 Fleischer RL, Price PB and walker RN, et. al. Tracks of cosmic rays in plastics. Science, 1967, 155:187~188
- 8 Fleischer RL, Price PB and Walker RM. Nuclear tracks in Solids. Univ, california press, 1975
- 9 李士主编. 应用核谱学, 北京:中国科学技术出版社, 1994
- 10 Amin SA and Henshaw DL. Effect of various etching solutions on the response of CR-39 plastic track detector. Nucl tracks, 1981, 190:415~418
- 11 Cartwright BG, Shirk and price PB. A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution Nucl. Instr. Meth 1978, 153:457~460
- 12 崔浣华. 吴日升, 核孔滤膜及其性质研究, 核技术. 1988, 11(9):22~23

- 13 Tidjani A. Effects of UV light on the efficiency of alpha-particle detection of CR-39, LR-115 type II and CN-85, Nucl Tracks, 1990, 17(4):491~495
- 14 庞德聆, 马国才, 周智新. CSR 环境氡监测器, 核技术, 1991, 14(3):144~149
- 15 施锦华, 陈昌华, 张军等. CSR 探测器在我国部分城市氡气测量中的应用, 核技术, 1991, 14(7):400~403
- 16 杨庆明, 孙仲田. 固体核径迹探测器对郑州地区氡气分布的初步测定, 核技术, 1991, 14(7):404~405
- 17 卢伟. 测氡仪器概述, 现代仪器, 2002, 2:5~8
- 18 孟文斌, 秦长珠, 庞德聆等. 用 CSR 固体径迹法测量室内氡浓度, 核技术, 1994, 17(6):376~379
- 19 陈凌, 张怀钦, 朱天成. 固体径迹探测器和火花计数器在氡监测上的应用, 核技术, 1991, 14(7):406~409
- 20 贾文懿, 方方, 周蓉生等. 氡及其子体运移规律与机理研究, 核技术, 2000, 23(3):169~175
- 21 章有余, 郭利章. 裂变径迹法分析水、血液和牙膏样品中的铀含量, 核技术, 1988, 11(9):32~33
- 22 林俊英, 郑里平, 程玉麟等. 饮料和矿泉水中微量铀的测定, 核技术, 1991, 14(7):430~432
- 23 程玉麟, 郑里平, 林俊英等. 血液中铀的测定与探讨, 核技术, 1988, 11(9):29~31
- 24 陈怀录, 杨化中, 赵东至. 裂变径迹分析法测定人尿中微量铀, 核技术, 1988, 11(9):35~36

Nuclear tracks in solids and their applications in environmental science and medicine

(Laboratory of Nuclear Analytical Techniques, Institute of High Energy Physics, the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

Abstract This paper reviews the development of nuclear tracks in solids techniques in recent years. It includes basic concept, experimental methods, characteristics and applications in environmental science and medicine. The prospects of nuclear track techniques are also briefly outlined in these research fields.

Key words Nuclear track in solid Environmental science Medicine

2005BCEIA 金奖获奖仪器及其生产厂商

上海伍丰科学仪器有限公司

成都科林分析技术有限公司

上海精密科学仪器有限公司

北京纳克分析仪器有限公司

北京普析通用仪器有限责任公司

上海精密科学仪器有限公司

北京三雄科技公司

北京瑞利分析仪器公司

北京普析通用仪器有限责任公司

北京雷明科技有限公司

LC-100 型高效液相色谱仪

AutoHS 型动态-静态双模式自动顶空进样器

GC128 型气相色谱仪

CPA-100 型金属原位分析仪

PCRS-15 型便携式快速光谱仪

JAI10003 型电子天平

GC-4400 型便携式光离子化气相色谱仪

AF-630/640 环保型原子荧光光谱仪

AS-90 型砷元素形态分析仪

MSP-1000 型化学用微波样品制备系统

第十五届全国光谱仪器与分析检测学术研讨会在京召开

2005年10月25~27日,中国仪器仪表学会光学仪器学会物理光学仪器专业委员会及《光谱仪器与分析》编辑部在北京成功召开了“第十五届全国光谱仪器与分析检测学术研讨会”。本届大会主题是“光谱仪器与生命科学”,目标是对生物医学、卫生防疫、临床研究、水质检测、食品检测、药品检测等与人类健康相关的各个领域的专家、教授、学者、工程技术人员、青年科研人员及业内人士展开讨论与交流。

本着相互交流,促进科研工作的宗旨,会议面向相关领域征集论文50余篇,论文中的创新性、涵盖面得到了与会专家的充分肯定。会议期间,专家、学者、作者及相关代表直接交流,并展开了认真的讨论。此次会议所带来的学术收获使参会代表们感到满意。